



Title	電子顕微鏡像コントラストの定量的解析による双晶境界構造の研究
Author(s)	丸川, 健三郎; Marukawa, Kenzaburo
Citation	北海道大學工學部研究報告, 125, 201-210
Issue Date	1985-03-29
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41906
Type	departmental bulletin paper
File Information	125_201-210.pdf



電子顕微鏡像コントラストの定量的解析による 双晶境界構造の研究

丸 川 健三郎

(昭和59年11月30日受理)

Atomic Structure of Twin Boundaries Deduced from Quantitative Analysis of Image Contrast of Electron Micrographs

Kenzaburo MARUKAWA

(Received November 30, 1984)

Abstract

Atomic structure of (112) twin boundaries in b.c.c Fe-Si alloy crystals was investigated by quantitative analysis of electron micrographs. Observations were made by utilizing common reflections to the matrix and twins. These common reflections should reveal lattice displacement, if any, accompanied by twin boundaries as fringe patterns, similar to those in the case of stacking faults. In order to separate components of the displacement from each other, several common reflections, mutually independent, were used. It was found that the displacement component along the twin boundary is null. Faint fringe patterns corresponding to the displacement component normal to the boundary was observed. This indicates that there is a dilatation associated with the boundary. Profiles of these fringes were measured and compared with the theoretical ones, which were calculated on the basis of the many beam theory of electron diffraction. From this comparison, the amount of the dilatation was deduced to be 0.07 d, where d is the spacing of (112) planes. The results are discussed in comparison with recent theoretical work on the defect structure.

1. ま え が き

格子欠陥の電子顕微鏡像は、それがブラッグ反射の局所的変化によって生じるものであるため、格子欠陥の形態ばかりでなくその性質を調べるためにも利用することができる。そのもっともよく知られた例は、ある特定の反射で像の消滅が起るということを利用した転位のバーガスベクトル決定であろう。像の出現消滅だけでなく像の対称性も、格子欠陥の性質判定に使うことができる。積層欠陥の型決定や転位ループの型決定などがその例である¹⁾。また、転位バーガスベクトル決定にも像の対称性の利用は有効である^{2,3,4)}。以上のような像コントラストの利用方法はいはば定性的利用と言うべきもので、さらに像の定量的解析を行えば、格子欠陥の伴う歪みや変位に対して定量的なデータが得られるであろう。このような試みとして、薄いマルテンサイト晶の

伴う歪みの大きさを求めた例など^{5,6)}があるが、今後さらに他の格子欠陥についても追求すべき問題であろうと思われる。

像の定量的解析のためには、写真の濃度測定とともに、結像理論の精密化も必要となる。従来の像の計算に一般に用いられて来たような2波近似の動力的電子線回折理論では不十分で、多波を考慮した理論を用いるべきである。また観察においては、各種のパラメーター、すなわち、試料の厚さやブラッグ条件からのずれの大きさなども求めておかねばならない。

本研究では、電子顕微鏡像の定量的解析によって、体心立方晶のFe-Si合金について、双晶境界の構造を精密に決定することを試みる。体心立方晶の双晶境界については理論的モデル計算によって2個の型(対称型と変位型)が存在し得ることが指摘されていた^{7,8,9)}。そして既に以前の論文¹⁰⁾においてFe-Si合金では実際に存在するのは対称型であることを明らかにした。この2型は境界面に平行な変位の有無によって区別されるが、さらに境界面に垂直な変位、つまり体積変化も一般には存在するはずである。今回の論文ではこの体積変化量を求めることを中心課題とする。このような界面に伴われた体積変化は界面への不純物偏析、ひいては材質の界面破壊との関連で重要な量であるが、いままで、これについての実験的研究はほとんどなされていない。

2. 解析方法

体心立方金属の双晶においては、双晶面が $\{\bar{1}\bar{1}2\}$ でありせん断方向 $\langle 111 \rangle$ である。図1に

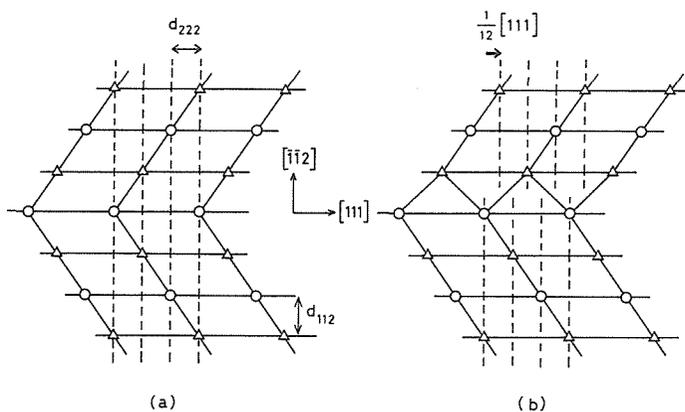


図1 体心立方金属における双晶境界の構造。(a)対称型、(b)変位型。
破線は(222)格子面を表す。

双晶境界構造のモデルを示した。(a)の構造を対称型、(b)を変位型と呼ぶ。理論によるモデル計算によれば両者のエネルギー差はわずかで、どちらがより安定な構造であるかは判定が困難である。この2型は双晶境界面 $(\bar{1}\bar{1}2)$ に平行な変位 $\mathbf{p}_1 = (1/12)[111]$ によって区別できる。さらに境界面近くでは各原子間の距離が完全結晶の場合とは異っているので、いくらか体積膨脹を伴うことが考えられる。そのとき、 $(\bar{1}\bar{1}2)$ 面の面間隔が境界面の近くでは少し変化し、そのため各原子は境界面に垂直方向に変位する。この大きさを境界面から離れた位置で測ることとし、上下結晶の相対変位 $\mathbf{e} = (x/6)[11\bar{2}]$ すなわち $|\mathbf{e}| = x \cdot d_{112}$ (d_{112} は(112)面の面間隔)で表すことにする。さらに一般性をもたせるため図の紙面に垂直な方向の変位 \mathbf{p}_2 もつけ加えて、境界面の上下の結晶の相対変位を

$$\mathbf{R} = \mathbf{e} + \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2 \quad (1)$$

と書くことにする。これら各成分の有無さらにその大きさを求めることが本論文の目的である。

図2に電子顕微鏡観察における試料の配置を示した。試料結晶中に表面に対して傾いた双晶境

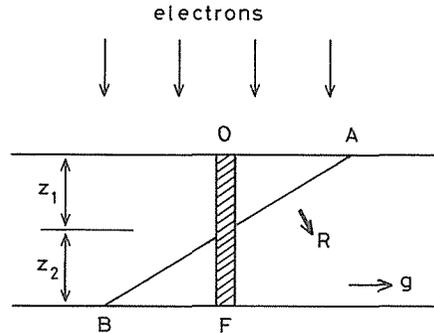


図2 観察における試料の配置。ABは双晶境界, OFは像計算に用いる柱状部。

界面ABがあるとする。面ABで境された2個の結晶部分は互に双晶関係にあるとともに上記の変位 \mathbf{R} だけずれている。そしてこの変位は電子線の入射側の結晶に対する下側結晶の変位として定義されているものとする。

このような双晶境界を含んだ試料を観察する場合、2つの結晶のうちどちらかだけが反射条件を満すような方位設定のもとで観察すれば、変位 \mathbf{R} について何も知ることができないが、両者に共通な反射（その反射ベクトルを \mathbf{g}_c と書く）を用いて観察すれば、この変位を像として検出することができる。すなわち、図1に示したように共通反射に対する格子面（この場合は $\mathbf{g}_c = 222$ ）は上下の結晶で変位 \mathbf{R} を除いてはつながっているため、この面だけに注目すれば積層欠陥を観察する場合と全く同じである。従って共通反射を用いるかぎり、双晶境界の像は積層欠陥と同様な縞模様を示すはずである。積層欠陥の縞模様のコントラストは欠陥面での反射波の位相のずれによって決まるが、同様に共通反射で観察した双晶境界の像も反射波の境界面での位相のずれ

$$\alpha = 2 \pi \mathbf{g}_c \cdot \mathbf{R} \quad (2)$$

によって決まるはずである。ただし積層欠陥の場合の変位は結晶学的に定った値をとるのに対し、いまの場合、 \mathbf{R} の大きさ、とくに成分 e の大きさは予測がつけ難い。 \mathbf{p}_1 成分については上に述べたように2つの型のそれぞれで定った値を持つ。このため、積層欠陥では $\alpha = 0$ か $\pm 2\pi/3$ となり、 α の大きさは既知であるので、その符号だけが問題となるが、いまの場合は α の大きさも問題にしなければならない。そして、もし、像コントラストの解析から α の大きさを求めることが出来るならば、異った3個以上の共通反射で観察を行ってそれぞれについて α を求めることにより、ベクトル \mathbf{R} の大きさと方向を完全に決めることができる。

以上のような解析方法にもとずいて変位の各成分を定量的に求めることができるが、そのためには、あらかじめ像コントラストと位相ずれ α との関係を調べておかねばならない。次にそのための像計算の方法について述べる。

3. 像計算の方法

格子欠陥の観察は通常1組の格子面だけがブラッグ条件を満足するような幾何学的条件の下で

行われる。このとき、その格子面の逆格子ベクトルを \mathbf{g} とすれば、結晶内には直進波 (\mathbf{o} 波) と反射波 (\mathbf{g} 波) が強く励起されるが、その他に必ず高次の波 (系統反射, $n\mathbf{g}$ 波, n は整数) もいくらかは励起される。通常高次の波を無視した理論 (2 波近似) が用いられるが、電子顕微鏡像から定量的情報を得たいときには、これも考慮に入れなければならない。2 波近似のときの積層欠陥の像に対しては解析的表現式が得られているが¹⁾、多波のときには数値計算によらざるを得ない。以下本研究で用いた計算法の概略を述べる。

電子線回折の多波理論¹⁾によれば、結晶中の電子波を $\phi = \sum u_f \exp(2\pi i \mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r})$ (ただし、 \mathbf{k}_f は f 波の波数ベクトル, \mathbf{r} は位置ベクトル) と表すとき、各成分波の振幅 u_f は次式に従って変化する。ただし、結晶は完全であるとしており、また、電子線の加速電圧が高いため、変化が電子線の入射方向 (その方向の座標を z とする) に沿ってのみ起ると考えている。

$$\frac{d}{dz} \mathbf{u} = 2\pi i \mathbf{A} \cdot \mathbf{u} \quad (3)$$

考慮に入れる波の数を N 個とすると、 \mathbf{u} は N 次元のベクトルで、その要素は $u_f (f=0, \pm \mathbf{g}, \pm 2\mathbf{g}, \dots)$ であり、 \mathbf{A} は N 次元の正方行列で、その要素は、

$$A_{fh} = \begin{cases} s_f + \frac{i}{2\eta_0} & (f=h \text{ のとき}) \\ \frac{1}{2\eta_{f-h}} + \frac{i}{2\eta_{f-h}} & (f \neq h \text{ のとき}) \end{cases} \quad (4)$$

である。ここに η_f は次式で与えられる。

$$\eta_f = \frac{\pi V}{\lambda F_f} = \frac{h^2}{2me\lambda} \cdot \frac{1}{V_f} \quad (5)$$

ただし λ は電子線波長, F_f は反射 f に対する構造因子, V は単位胞体積である。電子線に対する結晶ポテンシャルのフーリエ係数 V_f を用いて表わせれば第 2 式となる。ここに m は相対論補正を施した電子質量, e は電子電荷, h はプランク定数である。なおフーリエ係数の虚数部 V'_f を用いれば同じ式で η'_f の表現が得られる。なお η_f は 2 波近似では消衰距離となるものであり、 η'_f は電子線の吸収を表わすパラメータである。 s_f は逆格子点 $\mathbf{f} = n\mathbf{g}$ とエワルト球との距離を表わしているが、エワルト球の半径 ($1/\lambda$) が $|\mathbf{f}|$ に比べて十分大きいと考えられるので

$$s_f = \frac{\lambda}{2} \cdot \frac{n(n'-n)}{d^2} \quad (6)$$

と書ける。ただし、 $d = 1/|\mathbf{g}|$ 、また $n'\mathbf{g}$ はエワルト球と \mathbf{g} 方向の軸との交点であって、これがブラッグ条件からのずれを表わすパラメータとなっている。普通に使われるずれのパラメータ w とは $w = \xi_g \lambda (n' - 1) / 2d^2$ の関係があり、 $n' = 1$ のとき反射 \mathbf{g} が正確にブラッグ条件を満す。なお多波の場合の消衰距離 ξ_g は固有値方程式 $|\mathbf{A} - \gamma \mathbf{E}| = 0$ を解いて得られる。すなわち、固有値 $\gamma^{(1)}$ のうち値の最も大きな 2 個 $\gamma^{(1)}$ と $\gamma^{(2)}$ より $\xi_g = 1/(\gamma^{(1)} - \gamma^{(2)})$ として求められる¹⁾。

(3) 式を結晶上面 ($z = 0$) での与えられた境界条件の下で積分すれば、結晶中での振幅が求められる。通常の境界条件 $\mathbf{u}^{(0)}$ では、直進波の振幅 $u_0^{(0)} = 1$ で他の波は $u_f^{(0)} = 0 (f \neq 0)$ である。積層欠陥の像の計算ではこの解のみでなく、一般解が必要となる。そのために、境界条件 $\mathbf{u}^{(h)} = \{u_f^{(h)}\}$ 、ただし

$$u_f^{(h)} = 1 (f = h), \quad u_f^{(h)} = 0 (f \neq h)$$

を用い、それに対する解 ($U_0^{(h)}, U_f^{(h)}, \dots$) を求める。番号 h を順にずらせることにより、 N 組の解が得られるので、これを正方行列の形に並べて

$$P(z) = \{U_j^{(n)}\} \quad (7)$$

と書くとき、一般解は

$$u' = P(z) \cdot \dot{u} \quad (8)$$

である¹⁾。

さて、積層欠陥がある場合、下側の結晶では変位 R のために、ポテンシャル係数は $V_f \rightarrow V_f \exp(2\pi i g \cdot R)$ のように変換される。これに従って(4)式の行列要素は、

$$A_n = Q^{-1} \cdot A \cdot Q \quad (9)$$

$$Q = \{\exp(in\alpha)\} \quad (n = 0, \pm 1, \dots)$$

$$\alpha = 2\pi g \cdot R$$

となる。ただし Q は N 次元の対角行列である。このときの一般解は、

$$P_\alpha(z) = Q^{-1} \cdot P(z) \cdot Q$$

の変換で得られる。結局、以上をまとめると、図2のように上側の結晶の厚さを z_1 、下側のそれを z_2 とするとき、結晶下面 F での波は

$$u' = Q^{-1} \cdot P(z_2) \cdot Q \cdot P(z_1) \cdot u^{(0)} \quad (10)$$

で与えられる。明視野像の強度は直進波成分より、 $I_0 = |u_0|^2$ として計算される。また境界像のプロファイルは、図2に示したコラム OF の位置を順次ずらして計算をくり返せば得られる。

実際の計算ではまず、(3)式を Runge-Kutta 法によって数値積分し(7)式に相当するものを得た。このとき加速電圧500kV に相当する波長 $\lambda = 0.00142\text{nm}$ と Fe に対する構造因子を用いた。吸収

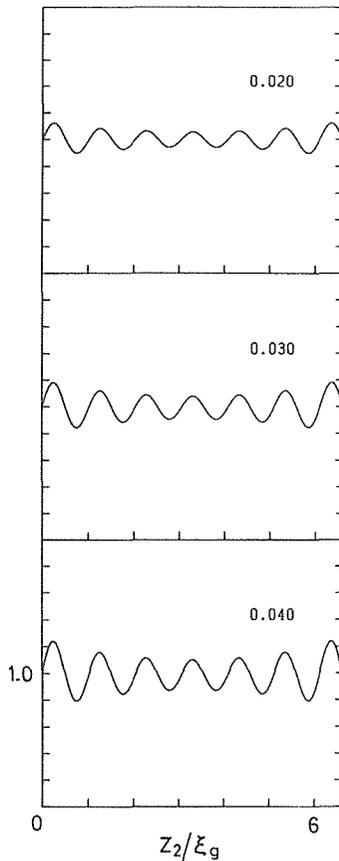


図3 理論計算で得た積層欠陥の明視野像のプロファイル。試料厚さ $6.6\xi_g$ の鉄に対する例。 $g=112$, $w=0$, 記入した数字は $g \cdot R$ の値。

係数については、Radi¹²⁾の理論値(Fe(112)反射に対しては $\eta_f/\eta'_f=0.07$)を用いた。計算結果はブラッグ条件からのずれ n' と $\alpha=2\pi\mathbf{g}\cdot\mathbf{R}$ とをパラメータとして含んでいる。また構造因子を通じて用いる反射 \mathbf{g} に依存する。数値積分の積分ステップ Δz は十分小さくとる必要があるが、この計算では、 $\Delta z\leq 0.3/(2\pi s_{max})$ ととれば十分の計算精度が得られた。ここに s_{max} は s_f の最大値である。また反射指数として $\mathbf{g}=110$ と $\mathbf{g}=112$ を用いたが、いずれの場合とも波の数を10個($n=-4, -3, \dots, 5$)以上に増やす必要のないことが分った。 $\mathbf{g}=112$ に対しては2波($n=0, 1$)で得たプロフィールと多波の結果とはそれほど差はないが、 $\mathbf{g}=110$ では両者の間にかんがりの差が見られた。

図3には計算で得られた像プロフィールの例を示した。電子線強度はすべてバックグランド強度で規格化して表してある。図の横軸は図2のコラム位置に相当する。実際には観察と合わせた反射指数 \mathbf{g} 、試料厚さ t 、とブラッグ条件からのずれ w を用い、 $\mathbf{g}\cdot\mathbf{R}$ を種々に変えた計算を行う。これと観察像のプロフィールを比較して $\mathbf{g}\cdot\mathbf{R}$ を決定する。

4. 実験方法と結果

観察試料の素材として歪焼鈍法で作ったFe-3.25wt%Siの単結晶を用いた。これより約 $0.2\times 5\times 20\text{mm}$ の薄板状の試料を切り出し、液体窒素中で引張り変形を行うことによって変形双晶を生じさせた。双晶形成と同時に試料は破断した。この試料について 800°C 2時間の焼鈍を施した後、りん酸クロム酸混液中で電解研磨を行って、透過観察用の薄片とした。焼鈍を行った理由は、双晶形成に伴って発生した転位を取除くためである。電子顕微鏡観察は加速電圧500kVで行った。

観察にあたっては、まず観察された双晶の双晶系の決定を行った。体心立方金属の双晶系はせん断方向 $\langle 111 \rangle$ と双晶面 $\{\bar{1}\bar{1}2\}$ との組合せとして計12個ある。せん断方向の決定には菊池線を利用した。また双晶面はほぼ正確に双晶境界面に平行となることが知られているので、境界面の方位から、この面を決定した。なお試料の厚さは写真に現われた縞模様の本数から、消衰距離 ξ_g の倍数として求めた。ブラッグ条件からのずれ w は通常の方法に従って菊池線の位置から推定した。

双晶系が決まれば、母相と双晶との共通反射が決まる。図4は共通反射をステレオ投影図とし

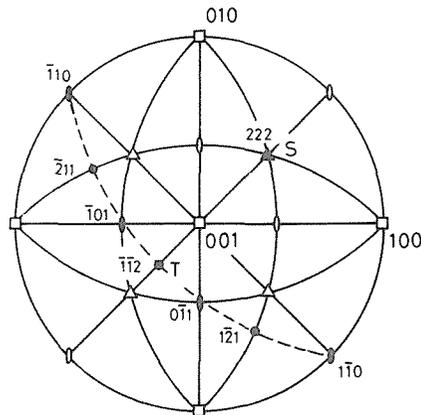


図4 母相と双晶に共通な反射(黒丸)。Sは双晶のせん断方向、Tは双晶面垂線。

て表したものである。ただし、今回の観察に用いたものだけを記入してある。図では双晶せん断方向を $[111]$ 方向に、また双晶面を $(\bar{1}\bar{1}2)$ 面に選んである。以下では観察された双晶についてすべてこの座標系を用いることにする。母相と双晶とは S を軸とした 180° の回転関係にあるので、この 180° 回転を行ったときに重なる点として共通反射方向が求められる。観察された双晶境界のそれぞれについて、これらの共通反射で順次観察できれば良いが、実際には電子顕微鏡試料台の回転角が小さかったため、1個の双晶境界についてせいぜい2個の共通反射しか利用できなかった。なお、(1)式のベクトル e , p_1 , p_2 はそれぞれ図の T , S , $[1\bar{1}0]$ 方向に平行であることを注意しておく。

図5は薄い双晶板について母相の反射での観察と共通反射での観察を行ったものである。(a)の

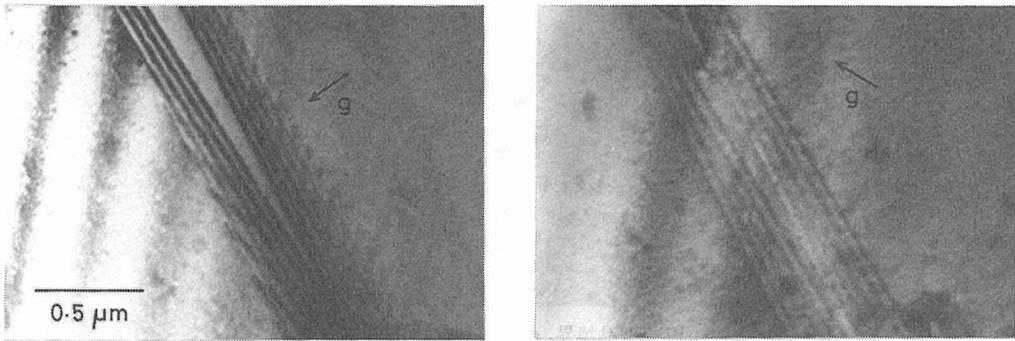


図5 薄い双晶。平行な2枚の双晶境界がある。(a) $g=00\bar{2}$ (母相の反射), (b) $g=2\bar{1}\bar{1}$ (共通反射)。

ように母相反射では双晶の部分はコントラストを示さない。これで見られる双晶境界上の縞は等厚干渉縞であって、境界に伴われた変位とは無関係である。これに対し、(b)で見られる淡い縞模様は境界での変位によって生じたものである。なお右側の境界面上には約 $0.1\mu\text{m}$ の間隔で並んだ多数の双晶転位が見られる。

図6には同一個所を2個の共通反射, $g_c=222$ と $g_c=01\bar{1}$ で観察した例を示した。 $g_c=01\bar{1}$ で

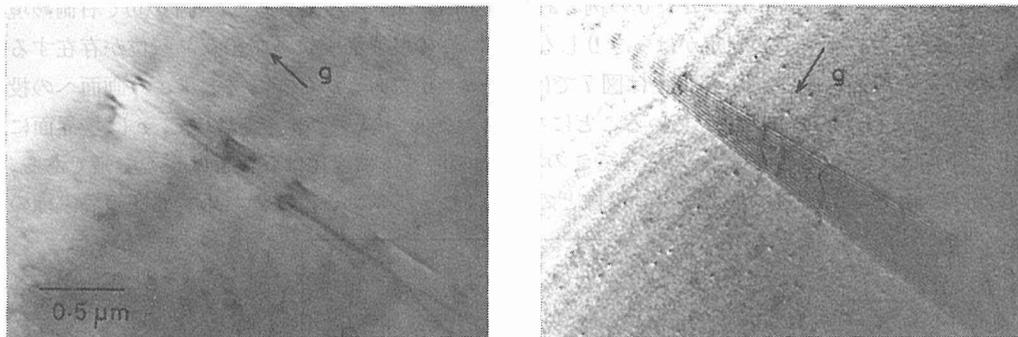


図6 双晶境界。(a) $g=222$ (共通反射), (b) $g=01\bar{1}$ (共通反射, 暗視野像)。

は双晶境界面に沿って縞模様が見られるが, $g_c=222$ では見られない。図4から分るように, $g_c=222$ はベクトル e と p_2 に直交しており, この反射における反射の位相ずれ $\alpha = 2\pi g_c \cdot R$ にはこれからの寄与はない。従ってこの反射で縞模様が見られないということ, すなわち $\alpha = 0$ ということは変位成分 p_1 がないということを意味する。この結論は既に以前の論文¹⁰⁾で得られていたものであって, この双晶境界が対称型 (図1(a)) であることを示している。ただし, 以前の観察

では用いた反射が $g_c=231$ であったため、他の変位成分からの寄与が混入しており、多少のあいまいさが残されていた。なおもし、双晶境界が変位型構造であるとすれば、 $p_1=(1/12)[111]$ であるから $g_c=222$ に対しては $\alpha=\pi$ となり、境界の像は極めて暗いものとなるはずであった。

同様な観察を $g_c=1\bar{1}0$ を用いて行ったが、 $g_c=222$ の場合と同様双晶境界では縞模様が現れなかった。この反射の場合、 α への寄与は p_2 成分だけであるので、 $p_2=0$ が結論できる。このように変位としては境界面に垂直な成分 e だけが存在することが分かった。このことは他の共通反射 $\bar{2}11$, $1\bar{0}1$, $0\bar{1}1$, $1\bar{2}1$ を用いた観察では常に縞模様が現われることから確認した。その例は既に図 5 (b), 図 6 (b) で示したが、他の例を図 7 に示す。このように双晶境界は体積変化を伴って

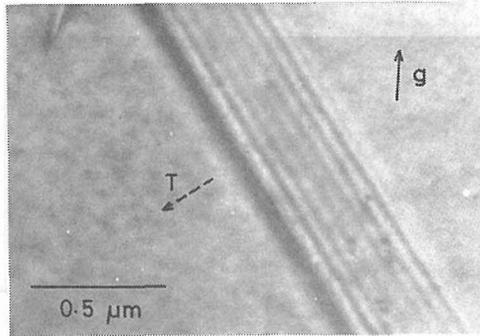


図7 双晶境界。 $g=\bar{1}2\bar{1}$ (共通反射)。 $w=0$.
T は双晶面垂線 (試料上面に向う)。

ると結論できる。従って、次にはこの変位成分の符号と大きさが問題となる。なお $R=e=(x/6)[11\bar{2}]$ であるので、上の4個の共通反射のいずれについても $g_c \cdot R = x/2$ が成立する。

変位成分 e の符号は積層欠陥の型決定^{1,11)}と同じ方法で決めることができる。すなわち、まず縞模様の最外側の縞の明暗から α の符号を求める。明視野像の陽面では $\alpha > 0$ のときに最外側に明るい縞が生じ、 $\alpha < 0$ のとき暗い縞が生じる。ただし体積変化はそれ程大きくなく、 $|\alpha| < \pi$ が成立すると仮定している。図 6 (b) は $\alpha < 0$ の例であり、図 7 は $\alpha > 0$ の例である。(図 6 (b) で右側の境界では像が非対称で、この判定がはっきりしないが、この境界面上に多数の双晶転位が存在するためだろうと思われる。) 従って例えば図 7 では、 $g \cdot e > 0$ であるから、ベクトル e の画面への投影は矢印 T とは逆の方向を向いていることになり、境界面の傾きと考え合わせて、 e は境界面に対して下向きであることが分かる。従ってこの境界面の伴う体積変化は収縮ではなく膨張である。

変位の大きさは3. で述べたように計算像との比較によって求める。このため境界像の縞模様の

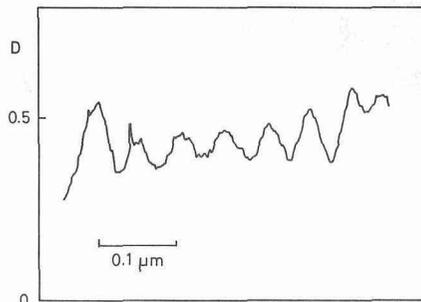


図8 写真濃度計で得た縞模様のプロフィール, 試料厚さ $6.6\xi_g$.

プロフィールを光学濃度計によって測定した。図8にその例を示す。電子線による露光の場合、写真濃度 D が低いとき ($D < 2$ のとき) には露光量と濃度とが比例することが知られている¹³⁾。従ってこのプロフィールはそのまま図3の理論曲線と比較することができる。この比較はバックグラウンド強度と縞強度の振幅との比に注目して行った。このような比較によって $g_c \cdot R = 0.035$ を得た。従って $x = 0.07$, つまり $|e| = 0.07 d_{112}$ が得られたことになる。なお、上の判定に伴う誤差は $0.01 d_{112}$ の程度と見積られる。

5. 考察とまとめ

以上述べて来たように、双晶境界では体積膨張があり、その大きさは境界の両側での相対変位で表して $e = (0.07 \pm 0.01) d_{112}$ ($d_{112} = 0.117 \text{nm}$) である、という結論が得られた。まずこのような局所的歪みは他のいかなる実験的手段でも得難いものであることを注意しておきたい。他の方法として、最近対応粒界 ($\Sigma = 11$) について高分解能電子顕微鏡の格子像観察法によって体積膨張を測定した例¹⁴⁾がある。このような方法は直接的ではあるが、その精度は電子顕微鏡の分解能 ($\cong 0.2 \text{nm}$) 程度しか保証できないはずである。今回用いたコントラストの解析による方がこれより1桁以上優れている。もっとも今回の方法が使えるのは共通反射が利用できるような場合に限られている。そのほか、実験上の問題点として、(i)境界面上に双晶転位がある場合には格子回転によるコントラストも重なってくるので、本方法による解析が行えないこと、(ii)試料厚さが一様でない個所ではプロフィール測定が困難なこと、(iii)濃度の高い写真では正しいプロフィールが得られないこと、(iv)像コントラストが試料のコンタミネーションの影響を受けるので注意が必要であることなどがあげられる。

次に得られた量を理論的モデルと比較する。まず剛体球モデルと比較する。結晶が互いに接する剛体球から構成されているとすると体心立方晶の場合、その剛体球は直径は $(\sqrt{3}/2)a$ である。ここに a は格子定数である。図1(a)に示した対称型双晶境界では境界をはさんで $2 d_{112} = (2\sqrt{6})a$ の位置に原子対が来るので、結局これらの差として $e = (\sqrt{3}/2 - 2\sqrt{6})a = 0.121 d_{112}$ だけの変位が境界面に垂直の方向にあることになる。剛体球モデルは原子間の反撥力を重視したモデルであるので、この値は考えられる体積変化の上限を与えているものと考えて良い。従って今回得られた量はこれと矛盾しない。他のモデルとして原子対間に適当なポテンシャルエネルギーを仮定して結晶を構成するものがある。Johnson型ポテンシャルを用いた例⁹⁾では、双晶境界の体積膨張量として $e = 0.107 d_{112}$ が得られている。これは今回の実験値より少し大きい。この不一致は原子対ポテンシャルのモデルが不適切なためと思われる。一般に金属の凝集エネルギーは

$$E = E_v + \frac{1}{2} \sum_{(i \neq j)} \phi_{ij}$$

のように原子対ポテンシャル ϕ_{ij} の和の項のほかに、体積依存項 E_v を含んでいるはずである。上の理論値は E_v 項を無視して得られたものであるが、もしこの項を取り入れたなら、それは結晶の体積を一定に保とうとする働きをするはずだから、より小さな体積膨張量が得られたはずである。他の格子欠陥の構造の議論においても体積依存項を取り入れた扱いはほとんどなされた例がないが、体積変化が問題とされる場合には、この項を正しくとり入れた理論が必要であろう。

以上、本研究をまとめると次のようになる。

(1)母相と双晶とに共通な反射を用いた電子顕微鏡観察によって双晶境界の伴う格子変位が像として検出できることを示した。

(2)さらに共通反射で得られた像のコントラストを定量的に解析することによって、この変位の量がかなりの精度で求められることを示し、そのための像計算の方法を示した。

(3) *Fe-Si* 合金の双晶境界について、以上のような方法を適用し、その伴う変位を調べた。その結果、境界面に平行な変位成分はなく、境界面に垂直な成分、すなわち体積膨張の成分だけがあること、その大きさが $(0.07 \pm 0.01) d_{112}$ であることを示した。

(4)得られた結果を原子対ポテンシャルを用いた理論値と比較し、現在広く格子欠陥構造の研究に用いられているこの理論の不備を指摘した。

謝 辞

本研究の推進にあたり適切な御助言を下された佐藤進一教授、ならびに卒業研究として実験の一部を分担して下さった家近啓吾、菱崎勇二の両君に感謝します。本研究の電子顕微鏡観察は工学部超高压電子顕微鏡室で行い、光学測定の一部には応用光学講座および応用電気研究所光計測部門の設備を使用した。御協力下さったそれぞれの研究室の方々に感謝します。なお像の理論計算は本学の大型計算機センターで行った。また本研究は文部省科学研究費の援助により行われたことを附記する。

文 献

- 1) 例えば P.B. Hirsch, A. Howie, R.B. Nicholson, D.W. Pashley and M.J. Whelan : *Electron Microscopy of Thin Crystals*, (1965), Butterworths.
- 2) K. Marukawa : *Phil. Mag.* **A40** (1979), P. 303.
- 3) K. Marukawa and Y. Matsubara : *Trans. Jpn. Inst. Met.*, **20** (1979), p. 560.
- 4) 丸川健三郎 : *日本金属学会会報*, **23** (1984), 3, p.182.
- 5) R.C. Pond and V. Vitek : *Proc. Roy. Soc. Lond.* **A357** (1977) p. 453.
- 6) J.W. Brooks, M.H. Loretto and R.E. Smallman : *Acta Met.* **27** (1979) p. 1839.
- 7) P.D. Bristowe and A.G. Crocker : *Phil. Mag.* **31** (1975) p. 503.
- 8) M. Yamaguchi and V. Vitek : *Phil. Mag.* **34** (1976) p. 1.
- 9) K. Marukawa : *Jpn. J. Appl. Phys.* **19** (1980) p. 403.
- 10) K. Marukawa : *Phil. Mag.* **36** (1977) p. 1375.
- 11) S. Amelinckx : *Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science* (1970) p. 257, North-Holland Publishing Company.
- 12) G. Radi : *Acta Cryst.* **A26** (1970) p. 41.
- 13) 丸勢進 : *電子顕微鏡 (実験物理学講座23, 上田良二編)* (1982) p.118, 共立出版
- 14) H. Ichinose and Y. Ishida : *Phil. Mag.* **A43** (1981) p. 1253.